

# 低融点ガラスの応用

足田 中一\*

## The Soldering and Sealing with Low Melting Point Glasses

By Chuichi Hikida  
Mobara Works, Hitachi, Ltd.

### Abstract

The writer discusses in the first place the development of special glasses of low softening point, used as a "solder" for jointing harder glasses to other glasses, metals, mica, etc. where excessive heat is objectionable, and their applications to sealing. In describing the properties of this special low-melting-point glasses he outlines the compositions and the melting method of  $\text{PbO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  system and  $\text{PbO-B}_2\text{O}_3\text{-SiO-ZnO}$  system glasses. The writer also explains the sealing and soldering procedure using these very soft glasses, and the proper combination of sealing materials in thermal expansion in cylindrical seal. He illustrates his descriptions on sealing by exemplifying such applications as stem sealing in miniature tubes, faceplate-to-cone sealing for kinescopes, mica window sealing for Geiger counter tubes, etc.

### 〔I〕 緒 言

低融点ガラスは一名ガラスハンダあるいはガラスエナメルと呼ばれ、特に軟化温度の低い特殊ガラスをいう。これは普通のガラスが変形しないような、比較的低い温度で軟化溶着する性質がある。

したがってこの低融点ガラスは金属の接合におけるハンダのように、ガラスとガラスとの接着やガラスと金属または耐火物などとの接着の場合に溶着中間体として接着剤の役目をさせることができる。

一般にガラスとガラス、ガラスと金属、ガラスと耐火物などの溶着には溶着しようとするガラスを加工温度（ガラスにもよるが大体  $1,000^\circ\text{C}$  くらい）まで加熱して直接溶着する方法が行われている。しかしこの方法は高温に加熱する必要があるので溶着部品が変質する場合や溶着するガラス部品が変形しては困る場合には採用できないし、また複雑な形状の溶着の場合には技術的な困難がある。

このような場合に低融点ガラスを用いて溶着するとはなはだ都合のよいことがある。

単に接着するだけの目的ならば種々の有機接着剤も使

われるが、低融点ガラスはこれらの接着剤と比較して耐気密性、耐熱性、化学的耐久性および接着強度においてすぐれた点も多いので、種々の器具や装置の工作に応用できると考えられる。そこで低融点ガラスの性質およびこれを用いた溶着についての概要を述べ、参考に供したいと思う。

### 〔II〕 低融点ガラス

#### （1）低融点ガラスの組成

低融点ガラスとして適しているものは種々考えられるが筆者が試作したものおよび文献に発表されたものからおもなものを抜萃してみる。

最も簡単な組成のものとしては  $\text{PbO-B}_2\text{O}_3$  二成分系のものの中に低融点ガラスとして使用できるものがある<sup>(1)</sup>。

この一例を第1表(次頁参照)に示す。

ここに示した熱膨脹係数は  $30\sim 280^\circ\text{C}$  の平均値であり、屈伏点は熱膨脹曲線の屈伏する最高位置の温度である。したがって屈伏点は大体軟化温度の比較に利用することができる。

しかしこの組成のものは化学的耐久性および機械的強度がいずれも弱い欠点があるので一般の用途はほとんど

\* 日立製作所茂原工場

無いが、屈伏点が特に低い点に着目して特殊な用途には便利なこともある。

PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> の三成分系になると化学的耐久性もかなり改善され、膨脹係数も普通の軟質ガラスに近いものが各種できる。この例を第2表に示す<sup>(2)</sup>。

PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-ZnO の四成分系になると性質はさらに良くなり、屈伏点も比較的強く膨脹係数も広範囲に変化する。この系統の例を第3表に示す<sup>(3)</sup>。

この四成分系は屈伏点を多少犠牲にすれば、硬質ガラスに合う低融点ガラスもできる。この例を第4表に示す。

このガラスは屈伏点は比較的高いが屈伏点以上の温度では急激に流動しやすくなるので多少無理はあるが低融点ガラスとしては使用できる。これを用いた場合、溶着部分は透明にはならないが接着強度、気密性、化学的耐久性など良好であった。

PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-ZnO 四成分系は屈伏点が比較的低く、膨脹係数が広範囲に変わるので便利な低融点ガラスであるが、この一部を Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> や Na<sub>2</sub>O (あるいは K<sub>2</sub>O) で置換したものも用途により良い成績をえたものがある。

CdS の入った組成の低融点ガラスが発表されている<sup>(4)</sup>。これは軟質ガラスであるミニチュア管の溶封に用いて良好な結果をえたとのことである。CdS の性質についてはまだ筆者の経験はないが発表された値を第5表に示す。

ここに示した軟化温度は前記の屈伏点とは異なる値である。

光学ガラスの重フリント SF-4 も低融点ガラスと同じ用途に使える。これは屈伏点はやや高いが、特殊な用途には良い結果をえている。この SF-4 の値を第6表に示す<sup>(5)</sup>。

## (2) 低融点ガラスの製法

低融点ガラスは比較的低温で溶融できるし、一般に量も少量でたりるので、簡単に製造できる。

溶融用の坩堝は普通のガラス溶融用と同じ材質の小型坩堝が良い。

加熱はニクロム線による電気炉か簡単なガス炉またはガス加熱程度で十分である。

たゞし低融点ガラスは一般に PbO が多いため、ガスや石炭などを燃料にして加熱する場合には、還元性のガスが低融点ガラスに当たらないよう注意を要する。

溶融温度は成分にもよるが、屈伏点の低いものは 800~900°C くらいで、溶融時間は1時間くらいが良い。溶融温度が高過ぎたり、溶融時間が長過ぎると、坩堝を侵蝕して、ガラス成分が変質し、この結果屈伏点が上昇して硬くなりやすい。

第1表 PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 二成分系の例  
Table 1. Example in the System PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Glasses

	PbO	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	熱膨脹係数	屈伏点
組成	88	12	129×10 <sup>-7</sup> /°C	295°C

第2表 PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> 三成分系の例  
Table 2. Example in the System PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> Glasses

PbO	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	膨脹係数	屈伏点
70	20	10	91×10 <sup>-7</sup> /°C	430°C
80	10	10	100×10 <sup>-7</sup> /°C	380°C
78	10	12	98×10 <sup>-7</sup> /°C	400°C

第3表 PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-ZnO 四成分系の例  
Table 3. Example in the System PbO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-ZnO Glasses

PbO	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	ZnO	膨脹係数	屈伏点
75	15	5	10	89×10 <sup>-7</sup> /°C	380°C
65	15	5	15	82×10 <sup>-7</sup> /°C	390°C
60	15	5	20	74×10 <sup>-7</sup> /°C	425°C

第4表 硬質ガラスに合う低融点ガラスの例  
Table 4. Example of Low Melting Point Glasses for Hard Glass Sealing

PbO	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	ZnO	膨脹係数	屈伏点
50	15	20	15	63×10 <sup>-7</sup> /°C	470°C
30	15	20	35	49×10 <sup>-7</sup> /°C	505°C

第5表 CdS の入った低融点ガラス  
Table 5. Low Melting Point Glass of CdS Contents

PbO	SiO <sub>2</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZnO	CdS	膨脹係数	軟化温度
65	11	10	7	7	87×10 <sup>-7</sup> /°C	450~500°C

第6表 光学ガラス SF-4 の性質  
Table 6. Properties of Optical Glass SF-4

SiO <sub>2</sub>	K <sub>2</sub> O	PbO	膨脹係数	屈伏点
28.4	25	69	96×10 <sup>-7</sup> /°C	440°C

溶融した液状の低融点ガラスは水中に流し出して急冷し、粉碎して保存する。たゞし水中へ流し出すとき、急激に多量流し込むと、爆発的に破壊することがあるから注意を要する。

一般に低融点ガラスは少し黄色に着色している場合が多いが、これは性能には差支えない。外観上困る場合は、

たとえば CoO を 0.01% 以下混入することなどにより消色が可能である。

〔III〕 溶着方法

(1) 低融点ガラスの塗布法

低融点ガラスを接着する部分へ塗布するには、粉末状の低融点ガラスに液体を少量加えて泥状とし、これを被着物に塗布する方法が最も簡単であり、用途も広い。

粒状の低融点ガラスをボールミルで 500 メッシュくらいの微粉にすれば単に水の添加のみで塗布しやすい泥状になり、各種の目的に使用できる。さらに鞏固に附着させようとするならば、粘結剤を加えたりあるいは塗布後の加熱により飛散する有機溶媒を用いる。たとえばニトロセルローズを約 2% 溶解した醋酸アミルで泥状にするがごときである。これらは筆で塗布することができるが、懸濁液にしてスプレーで吹きつけることもできる。

また低融点ガラスの粉末をリング状その他の形状に成型したものを、溶着する部分へ挟んで使う方法や、粉末状にしないで、溶融状態の低融点ガラスを直接接触させて、塗布する方法もある。

(2) 加熱方法

溶着のための加熱方法としては溶着するものを全体加熱して差支えない場合は電気炉の中へ入れて加熱する。局部的に熱したい場合は溶着部分の構造に適した小型の加熱体を作るとよい。

高周波加熱を用いるときは黒鉛や金属のリングを溶着させる部分の周囲に置き、これを熱して間接に加熱する。

溶着温度と溶着時間との関係は低融点ガラスの成分、粒度や仕上りの気泡度、気密性を考慮し、大体屈伏点より 100°C 以上高い温度で 10 分前後を選択する。

(3) 溶着体の熱膨脹係数の差と熱応力との関係

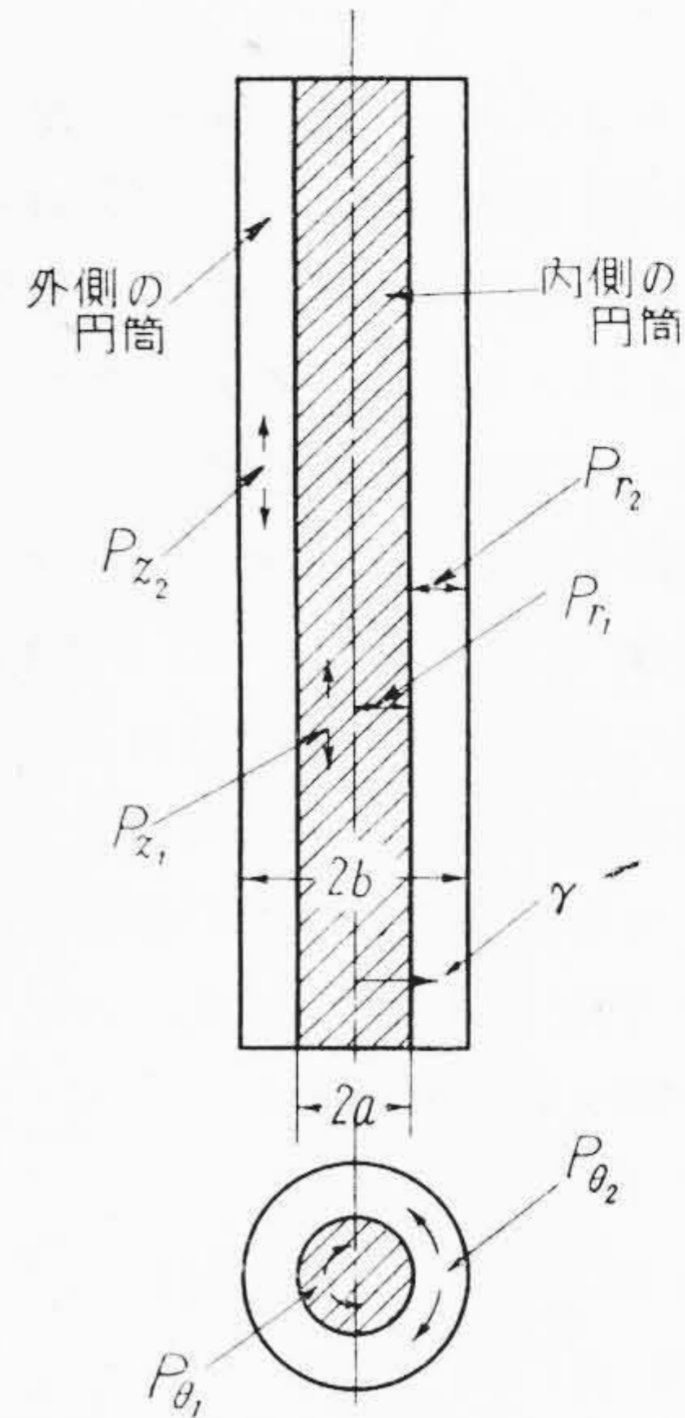
溶着体における各材料の熱膨脹の差のために起きる応力は、簡単な形状の場合には溶着する材料と低融点ガラスとの熱膨脹曲線あるいは膨脹係数より推定することができる(6)~(8)。

同軸円筒状あるいはこれに類似の溶封体における熱応力の算出は、Hull などの発表した関係式を応用することができる。

今第 1 図のような無限に長い同軸円筒状の溶封体を考えて、内側の材料および外側の材料の膨脹係数をそれぞれ  $\alpha_1, \alpha_2$  とし、温度  $t^\circ\text{C}$  で除歪し、室温  $t_0^\circ\text{C}$  まで下げた場合の伸の差を  $\delta$  とすれば

$$\delta = (\alpha_2 - \alpha_1)(t - t_0) \dots\dots\dots (1)$$

伸の差が  $\delta$  のときの外側の円筒の主応力の値は次式で与えられる。



第 1 図 円軸円筒状溶封体の模型図  
Fig.1. Model Form of Simple Cylindrical Seals

$$\left. \begin{aligned} P_{r2} &= \left[ \frac{E_2 \delta}{1 + K_1 + K_1 K_2 R} \right] \left[ \frac{a^2}{b^2} - \frac{a^2}{r^2} \right] \\ P_{\theta2} &= \left[ \frac{E_2 \delta}{1 + K_1 + K_1 K_2 R} \right] \left[ \frac{a^2}{b^2} + \frac{a^2}{r^2} \right] \\ P_{z2} &= \left[ \frac{E_2 \delta}{1 + K_1 + K_1 K_2 R} \right] \left[ 2\sigma \frac{a^2}{b^2} + \frac{1 + K_1 + K_1 K_2 R}{1 + K_2 R} \right] \end{aligned} \right\} \dots (2)$$

この式において

$P_{r2}, P_{\theta2}$  および  $P_{z2}$  = 外部円筒内における、それぞれ半径方向、切線方向および軸方向の主応力を示す

$E_1, E_2$  = それぞれ内側、外側のヤング率

$\sigma$  = ボアッソン比

$a, b$  = それぞれ内側、外側の円筒の半径

$r$  = 中心軸から測つた径方向の位置

$R = E_2/E_1$

$K_1 = a^2/b^2 (1 - 2\sigma)$

$K_2 = b^2/a^2 - 1$

を示す。

この (2) 式の  $P_{r2}, P_{\theta2}, P_{z2}$  の値は負のときは圧縮力、正のときは張力を示す。

内側の円筒の内部熱応力は次式で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} P_{r1} = P_{\theta1} &= \left[ \frac{E_2 \delta}{1 + K_1 + K_1 K_2 R} \right] \left[ \frac{a^2}{b^2} - 1 \right] \\ P_{z1} &= - \frac{b^2 - a^2}{a^2} \left[ \frac{E_2 \delta}{1 + K_1 + K_1 K_2 R} \right] \left[ 2\sigma \frac{a^2}{b^2} + \frac{1 + K_1 + K_1 K_2 R}{1 + K_2 R} \right] \end{aligned} \right\} \dots (3)$$

この式において

$P_{r1}$ ,  $P_{\theta1}$  および  $P_{z1}$  = それぞれ内部円筒内の半径方向, 切線方向および軸方向の応力を示す

(2) 式より,  $P_{z2}$  は  $r$  によらない一定値であるが,  $P_{r2}$  および  $P_{\theta2}$  はともに  $a=r$  の位置が最大応力となり, この値も  $b/a$  の値により変化することがわかる。

(3) 式より内部円筒の応力は  $r$  によらない一定値であり, この値は  $b/a$  により変化することがわかる。

また外部円筒の応力は常に圧縮力および張力がともに存するが, 内部円筒の応力は一方向のみである。

今異種のガラスを低融点ガラスで溶着する場合を考えてみる。上記の (2) および (3) 式において

$$E_1 = E_2 = 0.65 \times 10^4 \text{ kg/mm}^2$$

$$\sigma = \text{ともに } 0.3$$

$$\alpha_2 - \alpha_1 = 4 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C} \quad \text{とすれば}$$

$b/a = 1.1$  の場合は

$$P_{z2} = 0.9 \text{ kg/mm}^2, P_{\theta2} = 1 \text{ kg/mm}^2$$

$b/a = 2$  の場合は

$$P_{z1} = 0.3 \text{ kg/mm}^2, P_{z1} = 0.8 \text{ kg/mm}^2$$

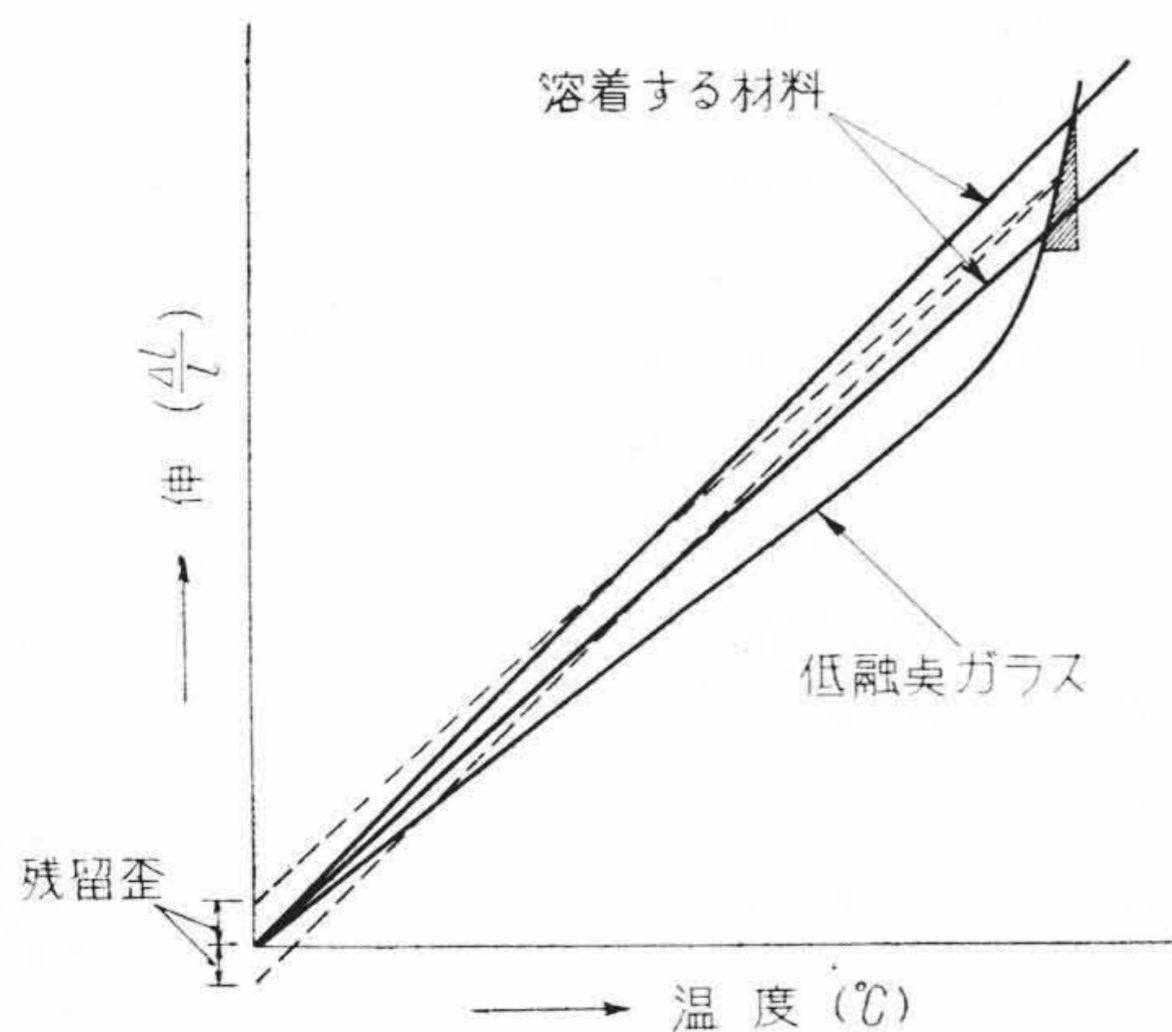
$b/a = 5$  の場合は

$$P_{z2} = 0.6 \text{ kg/mm}^2, P_{z1} = 1.2 \text{ kg/mm}^2$$

となる。

ガラスの抗張力から, 残留張力の限度は  $1 \text{ kg/mm}^2$  と考えられるから, 異種ガラスの膨脹係数の差は大体  $4 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$  くらいとなる。

ガラスは張力より圧縮力に強いことや, 金属の抗張力



第2図 溶着する材料と低融点ガラスとの膨脹曲線の組合せ, 点線は除歪後の冷却曲線を示す。斜線は低融点ガラスの除歪範囲を示す

Fig. 2. Suitable Combination of Thermal Expansion Curve of Sealing Materials and Low Melting Point Glass. Dotted Lines Show Cooling Curves from Annealing Temperature. Hatching Represents the Annealing Range of Low Melting Point Glass

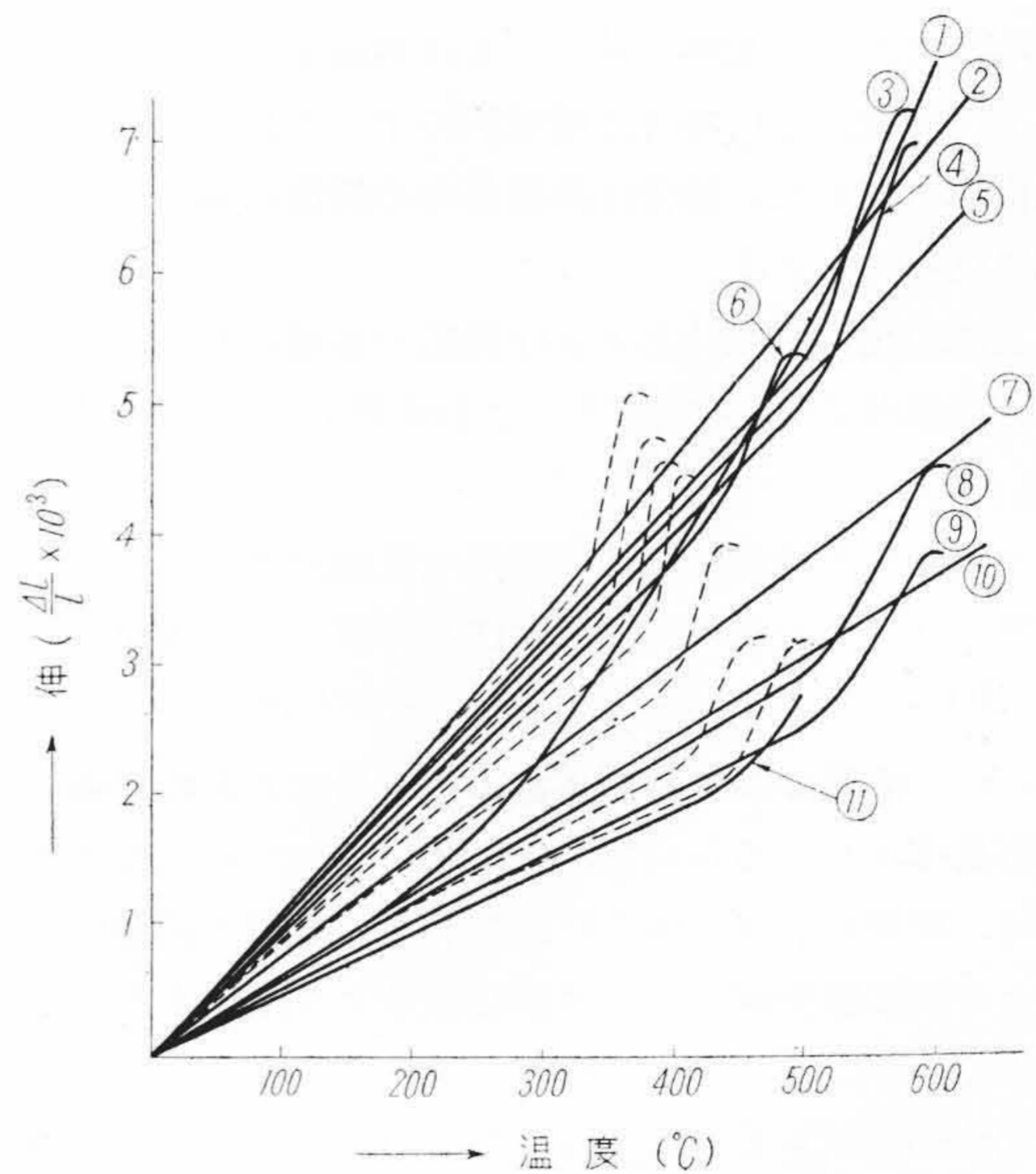
は一般に強いことを考慮に入れて, 適当に組合せれば一般の異種材料の溶着の際の膨脹係数の差は多少大きくできる。

低融点ガラスを用いて溶着した場合は三層の同軸円筒の問題になるが, 中間層の低融点ガラスと内部円筒との室温における伸の差が無くなるように除歪すれば中間層まで含めた, 円筒と外部円筒との二層の問題として近似的に取扱うことができる。中間層と外部円筒との伸の差の無い場合も同様に取り扱うことができる。

一般の三層の同軸円筒の溶封体の内部応力は, 上記の式を拡張したり, チュメット線の溶封の場合の関係を応用することができる<sup>(9)~(12)</sup>。

板状のものを貼り合せたような二層または三層の板状溶着の場合も容器などの特殊な溶着に応用できる。この場合の内部応力と膨脹係数との関係は色被せガラス (Flashed glass) などではらべられている式を参考にすれば良い<sup>(13)(14)</sup>。

またこれらの外にさらに複雑な溶着の場合としては円筒管と円筒管および円筒管と円板との溶着の際の内部熱応力の算出も報告されている<sup>(15)</sup>。



- ① Fe-Ni-Cr 合金
- ② Cr-Fe 合金
- ③ ソーダガラス
- ④ ソーダガラス
- ⑤ 雲母板
- ⑥ 鉛ガラス
- ⑦ ステアタイト
- ⑧ 硬質ガラス(化学器具用)
- ⑨ 硬質ガラス(Mo封入用)
- ⑩ 磁巻(市販品)
- ⑪ Fe-Ni-Co 合金

第3図 各種材料の熱膨脹曲線(実線), 点線はそれぞれに適する低融点ガラスの概略の曲線を示す

Fig. 3. Thermal Expansion Curves of Materials and Glasses. Dotted Lines Show Expansion Curve of Low Melting Point Glasses

同種の材料を低融点ガラスで溶着する場合は、この材料の膨脹曲線と低融点ガラスの膨脹曲線とが低融点ガラスの除歪範囲で交叉するような組合せを用い、この交叉点の温度で除歪すれば残留歪が最小になる。

このような組合せには低融点ガラスの膨脹係数を  $3\sim 5\times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$  くらい低くすれば良い。

異種材料を低融点ガラスで溶着する場合は、材料や溶封体の形状にもよるが前記のごとく  $4\sim 7\times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$  以下にする必要がある。この場合の除歪は第2図に示すように二つの交叉の中央の温度で行えば残留歪を二分するので各材料に残る歪が最小になる。勿論溶封体の材料や形状によつて除歪温度を多少調節した方が良い場合もある。

なお参考のために各種材料およびこれに適する低融点ガラスの膨脹曲線の例を一括して第3図に示す。

#### [IV] 溶着応用例

##### (1) ガラスとガラスとの溶着

(A) ミニチュア管のステムとバルブとの封着のような小型真空管の封止には電極の過熱を防ぐために低融点ガラスを利用する事がしばしば試みられている<sup>(2)~(4)</sup>。

この溶封の一例は第4図に示すようにボタステムとバルブとの溶着する部分へ低融点ガラスの粉末を適量塗布し、この周囲からガラスバルブに接触しないように固定したニクローム線コイルで加熱する。

この加熱体は  $0.5\text{ mm}\phi$  くらいのニクローム線を径  $6\text{ mm}$  くらいのコイルにして円筒状の耐火物の内側に円形に固定したものをを用いた。

(B) 大型の真空管の封着の例としてはブラウン管のフェースプレートとコーンとの溶着に応用して良好な結果をえた。この場合は双方の溶着部分を荒摺り程度に仕上げ、低融点ガラスをこの間に塗布して挟み、加熱する。

この場合は電気炉の中へ入れて全体を加熱しても良いが、局部的に加熱することもできる。この例を第5図に示す。

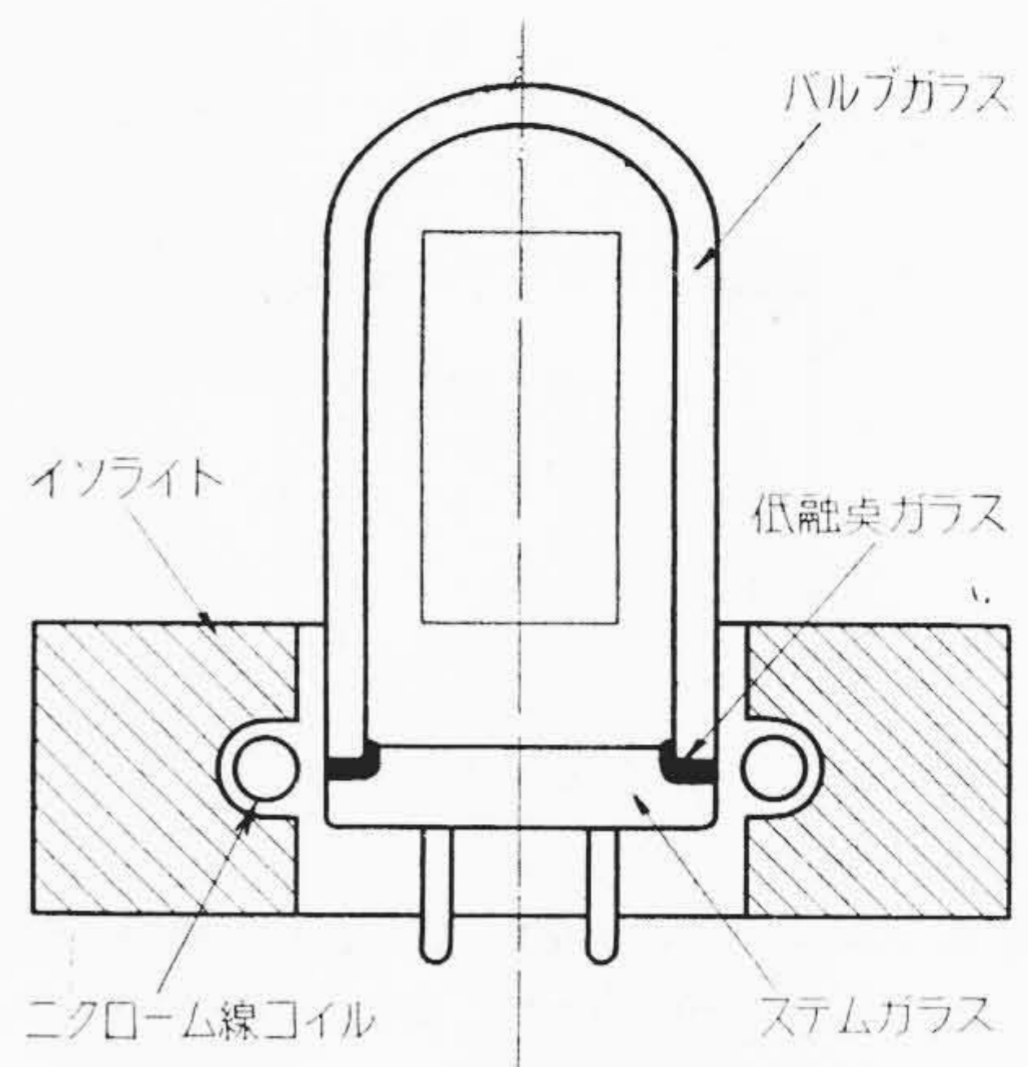
(C) ガラスとガラスとの溶着は複雑な形状の容器や実験装置の製作にも応用されている。

たとえばガラス板を組立てるガラス容器は実験の結果小さいものから  $300\text{ mm}\times 200\text{ mm}\times 100\text{ mm}$  くらいのものまで良好な成績をえている。

これらの場合は局部的に加熱するのは特殊な場合の外は困難であるので一般には全体を電気炉に入れて加熱する。

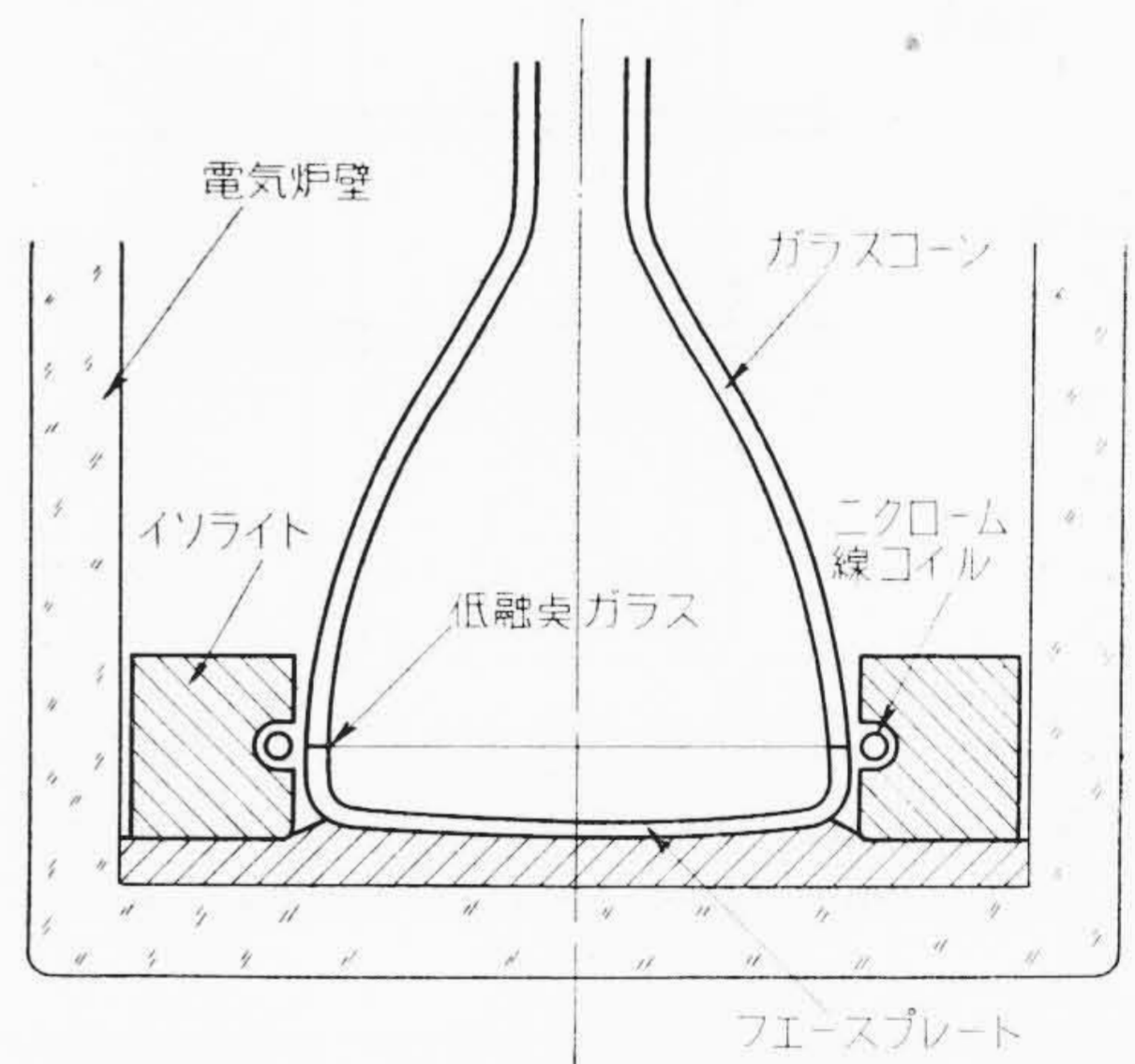
##### (2) ガラスと雲母板との溶着

計数管や特殊なX線管の雲母窓を着ける場合にもこの低融点ガラスを用いると良好な封着ができる。



第4図 低融点ガラスによるミニチュア管の封着方法

Fig.4. Sealing Method of Miniature Tube by Low Melting Point Glass



第5図 低融点ガラスによるブラウン管のコーンとフェースプレートとの溶着方法

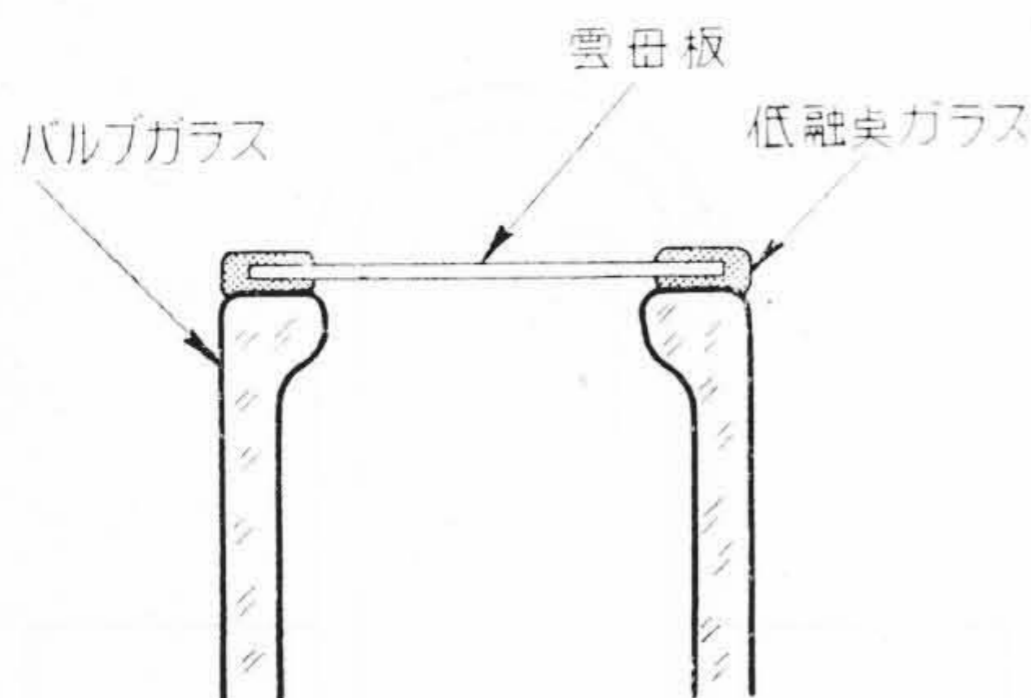
Fig.5. Face Plate to Cone Sealing by Low Melting Point Glass in Kinescope

計数管バルブの雲母板の封着方法について説明すると第6図に示したように窓の周囲のガラスの肉を厚くし、粗摺りで平にし、この部分へ低融点ガラスを塗布し、雲母板を密着させ、さらにその周囲を低融点ガラスで包むように塗布して、電気炉で  $500\sim 550^{\circ}\text{C}$  で加熱する。

雲母板は剝離しやすいので低融点ガラスで周囲を包むように溶着する必要がある<sup>(16)(17)</sup>。

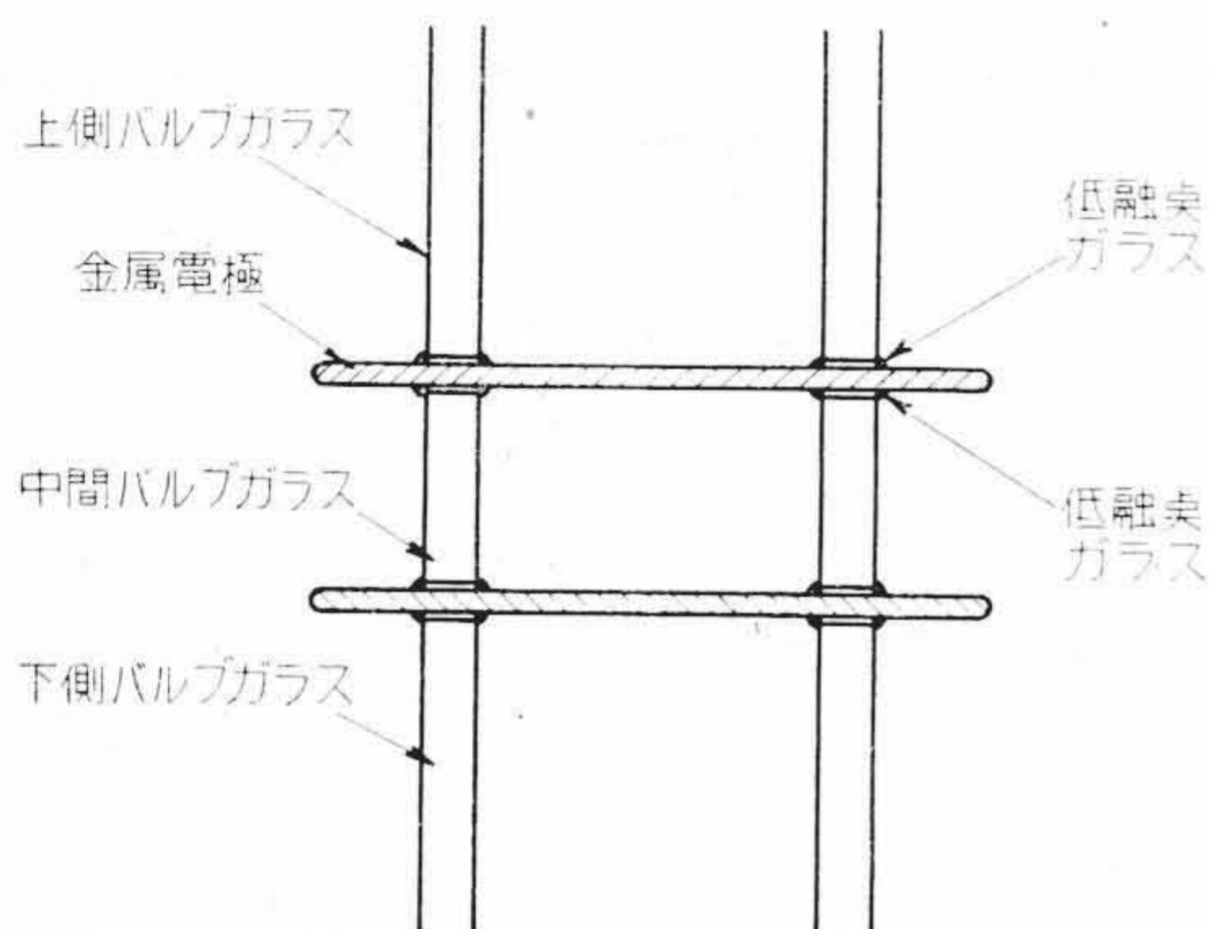
##### (3) ガラスと金属との溶着

ガラスと金属との溶着に低融点ガラスを用いる試みは板極管の板極封着、キネスコープ金属コーンとフェースプレートとの溶着および実験用の容器などで行った。今板極管の場合について簡単に説明すると、これは第7図(次頁参照)に示したような銅板とか鉄板(銀メッキした



第6図 低融点ガラスによる計数管の雲母窓の封着

Fig.6. Mica Window Sealing of Geiger Counter Tube by Low Melting Point Glass



第7図 低融点ガラスによる板極管の極板封着  
Fig.7. Metal Disc Sealing by Low Melting Point Glass in Disc Sealed Tube

もの) とかの板状の封着金属を管状のガラスバルブの軸に垂直かつ平行に封着した形状の真空管であるが、電極の間隔を正確に出すためにあらかじめバルブガラスを一定寸法に正確に切断して置いた。一般に金属を溶着するにはあらかじめ低融点ガラスで、薄いガラス膜を溶着して置いた方がよい。またこのような同軸状の金属を封着するには高周波加熱をした方が便利である。

#### (4) その他

この外に磁器とガラスとの溶着も、この低融点ガラスを用いて溶着できる。この場合もあらかじめ低融点ガラスの膜を磁器の溶着部分へ溶着させておき、これへ他のガラスを着ける方がやりよい。

この他の点では、大体上記の諸例と類似しているので略す。

## 〔V〕 結 言

以上簡単に、低融点ガラスを用いた場合の溶着に関する応用を述べたが、低融点ガラス自身まだ改良の余地が多く、特に膨脹係数の小さいものは軟化温度がまだ高過ぎるので、改良を要する。

応用例もきわめて特殊なものになつたが、この外にも多くの応用例が考えられる。また溶着の外に表面処理や固定(封着ではなく単なる固定)などにも応用できる。

実験技術としての応用でも、筆者は便利と思つたことを経験している。

溶着の場合まず考えなければならないことは、膨脹係数の相違によつて起きる内部熱応力である。

これをしらべるには各材料および低融点ガラスの熱膨脹曲線を測定し、計算式を適用してなるべく安全な組合せにした方がよい。ここでは同軸円筒の場合の式のみを紹介したが、この他の場合は記載した文献を参照していただきたい。

大体の値としては、膨脹係数の差が $4\sim 5 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ 以下ならば良いと考える。

#### 参 考 文 献

- (1) Geller, R. F., Bunting, E. N.: J. Research Natl. Bur. Standards 18, 585 (1937)
- (2) 池田: 窯業協会誌 59, 580 (昭 26-12)
- (3) Ceramic Abs. 32, 104 (1949)
- (4) 太田・佐藤・中村: 通研月報 4, 417 (昭 26-6)
- (5) G. W. Morey: The Properties of Glass, 86 (1938)
- (6) A. W. Hull, E. E. Burger: Physics 5, 384 (1934)
- (7) A. W. Hull: J. App. Phys. 17, 685(1946-8)
- (8) 宮城: ガラスと金属との溶封 (昭 17)
- (9) 小関: 電気通信学会誌 31, 6 (昭 23-1)
- (10) 北野: 窯業協会誌 59, 382 (昭 26-9)
- (11) 高木: 東芝レビュー 5, 149 (昭 25-4, 5)
- (12) 水池: 電気通信学会誌 35, 274 (昭 27-6)
- (13) 北島・北山: チモシエンコ材料力学 154(昭 19)
- (14) W. M. Hampton: J. Glass Tech. 17, 273 (1933-9)
- (15) 高木: 東芝レビュー 9, 459 (昭 29-5)
- (16) C. L. Meaker, H. A. Glassford: J. Rev. Sci. Inst. 18, 693 (1947-10)
- (17) J. S. Donal: J. Rev. Sci. Inst. 13, 266(1942)